

日本国特許庁
JAPAN PATENT OFFICE

PCT/JPC3/06048

02.06.03

別紙添付の書類に記載されている事項は下記の出願書類に記載されている事項と同一であることを証明する。

This is to certify that the annexed is a true copy of the following application as filed with this Office

出願年月日

Date of Application:

2002年 6月 3日

出願番号

Application Number:

特願2002-161178

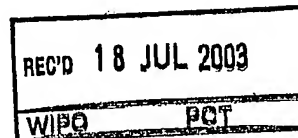
[ST.10/C]:

[JP2002-161178]

出願人

Applicant(s):

株式会社ブリヂストン
株式会社GSIクレオス

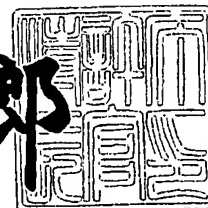


PRIORITY DOCUMENT
SUBMITTED OR TRANSMITTED IN
COMPLIANCE WITH
RULE 17.1(a) OR (b)

2003年 7月 3日

特許庁長官
Commissioner,
Japan Patent Office

太田信一郎



出証番号 出証特2003-3052623

特 2002-161178

【書類名】 特許願

【整理番号】 22741B762

【提出日】 平成14年 6月 3日

【あて先】 特許庁長官 殿

【国際特許分類】 C08L 21/00

【発明の名称】 ゴム組成物及びこれを用いたタイヤ

【請求項の数】 7

【発明者】

【住所又は居所】 東京都小平市小川東町3-1-1 株式会社ブリヂストン 技術センター内

【氏名】 青木 勢

【特許出願人】

【識別番号】 000005278

【氏名又は名称】 株式会社ブリヂストン

【代理人】

【識別番号】 100078732

【弁理士】

【氏名又は名称】 大谷 保

【手数料の表示】

【予納台帳番号】 003171

【納付金額】 21,000円

【提出物件の目録】

【物件名】 明細書 1

【物件名】 要約書 1

【包括委任状番号】 9700653

【ブルーフの要否】 要

【書類名】 明細書

【発明の名称】 ゴム組成物及びこれを用いたタイヤ

【特許請求の範囲】

【請求項 1】 ゴム 1 0 0 質量部と、充填材としてカップスタック型カーボンファイバー 0. 1 ~ 1 0 0 質量部とを配合してなることを特徴とするゴム組成物。

【請求項 2】 前記カップスタック型カーボンファイバーの直径が 1 ~ 1 0 0 0 n m、長さが 0. 1 ~ 1 0 0 0 μ m である請求項 1 記載のゴム組成物。

【請求項 3】 前記カップスタック型カーボンファイバーの直径が 5 ~ 5 0 0 n m、長さが 0. 5 ~ 7 5 0 μ m である請求項 1 記載のゴム組成物。

【請求項 4】 前記カップスタック型カーボンファイバーの直径が 1 0 ~ 2 5 0 n m、長さが 1 ~ 5 0 0 μ m である請求項 1 記載のゴム組成物。

【請求項 5】 前記カップスタック型カーボンファイバー以外の充填材を 1 ~ 6 0 質量部配合することを特徴とする請求項 1 ~ 4 のいずれかに記載のゴム組成物。

【請求項 6】 前記カップスタック型カーボンファイバー以外の充填材がカーボンブラックおよび／または無機充填材である請求項 5 記載のゴム組成物。

【請求項 7】 請求項 1 ~ 6 のいずれかに記載するゴム組成物を用いたタイヤ。

【発明の詳細な説明】

【0 0 0 1】

【発明の属する技術分野】

本発明はゴム組成物及びこれを用いたタイヤに関し、詳しくは、熱伝導性に優れたゴム組成物及びこれを用いたタイヤに関する。

【0 0 0 2】

【従来の技術】

電気電子部品、タイヤ、ベルト等の各種製品には、その特性に応じて、種々の天然ゴムや各種合成ゴムを基材としたゴム組成物が使用されている。かかる製品の性能や機能は、基材としてのゴム材料と同様に、種々配合されている充填材等

の副資材や加硫条件などによっても大きく影響を受ける。

例えば、天然ゴムの補強効果を得るための充填材としてはカーボンブラックやシリカが広く知られており、熱伝導性を高めるためにはアルミナや窒化ホウ素等を、また、電気伝導性を付与するためには銅やニッケルのような金属粉や導電性カーボンを、それぞれ配合する等の手法が取られている。

【0003】

しかしながら、従来知られている充填材において、高い効果を得るためには配合量を増大するしかなく、結果として、充填材の均一な分散を得ることができず性能にバラツキが出たり、粘度の上昇や物性の低下が大きくなって成型性が悪化する、得られたゴム物品の力学物性が低下して実用に供し得なくなるなどの欠点をも伴うものであった。

【0004】

【発明が解決しようとする課題】

本発明の目的は、比較的少量の添加によってゴムに高い熱伝導性を付与することができ、かつ、力学物性などの他の性能に悪影響を及ぼさないゴム組成物用充填剤を見出し、これを用いたゴム組成物を提供すること、又これらのゴム組成物を用いた高性能なタイヤを提供することを目的とするものである。

【0005】

【課題を解決するための手段】

本発明者は、上記課題を解決するために鋭意検討した結果、ゴムに充填材としてカップスタック型カーボンファイバーを添加することによって上記目的を達成することを見出し、本発明を完成したものである。

【0006】

【発明の実施の形態】

本発明のゴム組成物は、ゴムを基材とし、これにカップスタック型カーボンファイバーを添加することを特徴とする。

ゴムとしては、天然ゴム、汎用合成ゴム、例えば、乳化重合スチレンーブタジエンゴム、溶液重合スチレンーブタジエンゴム、高シスー1，4ポリブタジエンゴム、低シスー1，4ポリブタジエンゴム、高シスー1，4ポリイソプレンゴム

等、ジエン系特殊ゴム、例えば、ニトリルゴム、水添ニトリルゴム、クロロプレンゴム等、オレフィン系特殊ゴム、例えば、エチレン-プロピレンゴム、ブチルゴム、ハロゲン化ブチルゴム、アクリルゴム、クロロスルホン化ポリエチレン等、その他特殊ゴム、例えば、ヒドリンゴム、フッ素ゴム、多硫化ゴム、ウレタンゴム等を挙げることができる。コストと性能とのバランスから、好ましくは、天然ゴムまたは汎用合成ゴムである。

【0007】

本発明に係るゴム組成物は、イオウ、過酸化物、金属酸化物等を添加して加熱により架橋させる方法や、光重合開始剤を添加して光照射により架橋させる方法及び電子線や放射線を照射して架橋させる方法等により、加硫して使用することが好ましい。

【0008】

本発明に係るカップスタック型カーボンファイバーはカップスタック形状を有するカーボンファイバーで、直径が1～1000nmの範囲であることが好ましく、さらには直径が5～500nm、特には直径が10～250nmの範囲であることが好ましい。また、その長さとしては0.1～1000μmの範囲であることが好ましく、さらには長さが0.5～750μm、特には長さが1～500μmの範囲であることが好ましい。

本発明のゴム組成物は、ゴム100質量部と、上記カップスタック型カーボンファイバー0.1～100質量部を配合するものである。カップスタック型カーボンファイバーの配合量がこの範囲内であると、十分な熱伝導性を得ることができるとともに、混合や成型等における作業性が良好となる。また、同様の観点からカップスタック型カーボンファイバーの配合量は0.5～50質量部の範囲であることがさらに好ましい。

【0009】

本発明の組成物においては、カップスタック型カーボンファイバー以外にカーボンブラックおよび/または無機充填材、その他の各種充填材を1～60質量部、特には1～40質量部配合することが好適である。ゴム組成物中にこれらの充填材が適量配合されていると、カップスタック型カーボンファイバーのみを添加

した場合に比してより高い補強効果が得られる。

カーボンブラックとしては特に制限はなく、従来ゴム組成物の補強性充填材として慣用されているものの中から任意のものを選択して使用することができる。具体的には、FEF, SRF, HAF, ISAF, SAF等が挙げられ、ヨウ素吸着量 (IA) 60 mg/g以上で、かつ、ジブチルフタレート吸油量 (DBP) 80 ml/100 g以上のものが好ましい。これらの中でも特に、耐摩耗性に優れるHAF, ISAF, SAFが好ましい。

【0010】

前記無機充填材としては、従来ゴム工業で使用されているものを使用することができ特に限定されず、例えば γ -アルミナ、 α -アルミナ等のアルミナ (Al_2O_3)、ペーマイト、ダイアスポ等のアルミナー水和物 ($Al_2O_3 \cdot H_2O$)、ギブサイト、バイヤライト等の水酸化アルミニウム [$Al(OH)_3$]、炭酸アルミニウム ($Al_2(CO_3)_3$)、水酸化マグネシウム [$Mg(OH)_2$]、酸化マグネシウム (MgO)、炭酸マグネシウム ($MgCO_3$)、タルク ($3MgO \cdot 4SiO_2 \cdot H_2O$)、アタパルジャイト ($5MgO \cdot 8SiO_2 \cdot 9H_2O$)、チタン白 (TiO_2)、チタン黒 (TiO_{2n-1})、酸化カルシウム (CaO)、水酸化カルシウム [$Ca(OH)_2$]、酸化アルミニウムマグネシウム ($MgO \cdot Al_2O_3$)、クレー ($Al_2O_3 \cdot 2SiO_2$)、カオリン ($Al_2O_3 \cdot 2SiO_2 \cdot 2H_2O$)、パイロフィライト ($Al_2O_3 \cdot 4SiO_2 \cdot H_2O$)、ベントナイト ($Al_2O_3 \cdot 4SiO_2 \cdot 2H_2O$)、ケイ酸アルミニウム (Al_2SiO_5 、 $Al_4 \cdot 3SiO_4 \cdot 5H_2O$ 等)、ケイ酸マグネシウム (Mg_2SiO_4 、 $MgSiO_3$ 等)、ケイ酸カルシウム ($Ca_2 \cdot SiO_4$ 等)、ケイ酸アルミニウムカルシウム ($Al_2O_3 \cdot CaO \cdot 2SiO_2$ 等)、ケイ酸マグネシウムカルシウム ($CaMgSiO_4$)、炭酸カルシウム ($CaCO_3$)、酸化ジルコニウム (ZrO_2)、水酸化ジルコニウム ($ZrO(OH)_2 \cdot nH_2O$)、炭酸ジルコニウム ($ZrCO_3$)、各種ゼオライトのように電荷を補正する水素、アルカリ金属又はアルカリ土類金属を含む結晶性アルミノケイ酸塩等が挙げられ、これらの中でシリカや窒素吸着比表面積 (N_2SA) 1 ~ 20 m²/gの水酸化アルミニウムが好ましく、特にシリカが好ましい。

シリカとしては特に制限はなく、従来ゴムの補強材として慣用されるものの中から任意に選択して使用することができる。例えば湿式シリカ（含水ケイ酸）、乾式シリカ（無水ケイ酸）、ケイ酸カルシウム、ケイ酸アルミニウム等が挙げられるが、中でも沈降法による合成シリカが好ましい。

尚、ゴム組成物の混合、成型などの手法としては、通常のゴムの混合、成型に使用される公知の手法を用いることができ、特に制限はない。

【0011】

本発明のゴム組成物は、カップスタック型カーボンファイバーを少量配合することによって、他の物性を大きく変化させることなく、また、成型加工性も損なうことなく、熱伝導性の大幅な向上が可能となるために、電気電子部品、タイヤ、ベルト、その他各種製品に幅広く使用することが可能である。尚、本発明のゴム組成物には、ゴム業界で一般に使用されている添加剤、例えば、加硫促進剤、補強材、老化防止剤、軟化剤等、通常のゴム用添加剤を適宜使用することが可能である。

【0012】

【実施例】

次に、本発明を実施例によりさらに詳しく説明するが、本発明はこれらの例によってなんら限定されるものではない。

（物性評価法）

実施例1～6及び比較例1で得られるゴムシートについて、熱伝導性を評価した。具体的には、京都電子（株）製、迅速熱伝導率計QTM-500を用いて測定した熱伝導率により評価した。

【0012】

実施例1～実施例6、比較例1

カップスタック型カーボンファイバー及び各種添加剤を第1表に示す配合内容にて、天然ゴム（NR）に配合し、以下に示す混練り条件およびシート作製条件に従い加硫ゴム組成物のシートを作製した。尚、第1表中の配合量は全て質量部を表す。熱伝導率を第1表に示す。

【0013】

混練り条件

ラボプラストミル（東洋精機（株）製）を用いて、天然ゴム（NR）を70℃にて50rpmで3分間素練りした後、第1表に示す、加硫促進剤および硫黄を除く各添加剤を投入して、70℃にて50rpmで更に混合した（ノンプロ配合）。得られた混合物を取り出して、冷却、秤量した後、残りの加硫促進剤および硫黄を投入し、プラベンダーを用いて、50℃にて50rpmで再度混合した（プロ配合）。

シート作製条件

混練りした混合物を高温プレスを用いて150℃×15分にて加硫して、1mm厚の加硫ゴムシートを作製した。

【0014】

【表1】

第1表

| | 実施例1 | 実施例2 | 実施例3 | 実施例4 | 実施例5 | 実施例6 | 比較例1 |
|----------------------------------|------|------|------|------|------|------|------|
| NR | 100 | 100 | 100 | 100 | 100 | 100 | 100 |
| HAF級カーボンブラック | 25 | — | 25 | — | 25 | — | 50 |
| カップスタック型カーボンファイバーA ^{*1} | 25 | 50 | — | — | — | — | — |
| カップスタック型カーボンファイバーB ^{*2} | — | — | 25 | 50 | — | — | — |
| カップスタック型カーボンファイバーC ^{*3} | — | — | — | — | 25 | 50 | — |
| 老化防止剤 | 2 | 2 | 2 | 2 | 2 | 2 | 2 |
| ステアリン酸 | 2 | 2 | 2 | 2 | 2 | 2 | 2 |
| 酸化亜鉛 | 3 | 3 | 3 | 3 | 3 | 3 | 3 |
| 加硫促進剤 | 1 | 1 | 1 | 1 | 1 | 1 | 1 |
| 硫黄 | 1.5 | 1.5 | 1.5 | 1.5 | 1.5 | 1.5 | 1.5 |
| 熱伝導度(W/mK) | 0.38 | 0.46 | 0.39 | 0.49 | 0.38 | 0.46 | 0.33 |

【0023】

- 1) カップスタック型カーボンファイバーA；直径50～200nm、長さ5～200μm
- 2) カップスタック型カーボンファイバーB；直径50～200nm、長さ5～200μm、あらかじめ絡み合いをほぐしたもの
- 3) カップスタック型カーボンファイバーC；直径50～200nm、長さ0.05～10μm

【0015】

【発明の効果】

本発明のゴム組成物によれば、少量の添加であっても、他の諸物性を大きく変化させることなく、また、成型加工性を損なうこともなく、熱伝導性の大幅な向上効果を得ることができる。従って、本発明の加硫ゴム組成物は、電気電子部品、タイヤ、ベルト、その他各種製品に幅広く使用することが可能であり、特にタイヤに使用した場合には、その放熱効果により発熱を抑制することが可能となり好適である。

【書類名】 要約書

【要約】

【課題】 高い熱伝導性を有し、かつ、力学物性など他の性能にも優れるゴム組成物及びこれらのゴム組成物を用いた高性能なタイヤを提供すること。

【解決手段】 ゴム100質量部と、充填材としてカップスタック型カーボンファイバー0.1～100質量部とを配合してなることを特徴とするゴム組成物及びこれを用いたタイヤである。

【選択図】 なし

特2002-161178

【書類名】 出願人名義変更届
【提出日】 平成14年10月 2日
【あて先】 特許庁長官殿
【事件の表示】
【出願番号】 特願2002-161178
【承継人】
【識別番号】 000105154
【氏名又は名称】 株式会社ジーエスアイクレオス
【承継人代理人】
【識別番号】 100078732
【弁理士】
【氏名又は名称】 大谷 保
【手数料の表示】
【予納台帳番号】 003171
【納付金額】 4,200円
【ブルーフの要否】 要

特2002-161178

認定・付加情報

| | |
|---------|---------------|
| 特許出願の番号 | 特願2002-161178 |
| 受付番号 | 50201483614 |
| 書類名 | 出願人名義変更届 |
| 担当官 | 兼崎 貞雄 6996 |
| 作成日 | 平成15年 2月28日 |

<認定情報・付加情報>

【承継人】

| | |
|----------|-------------------|
| 【識別番号】 | 000105154 |
| 【住所又は居所】 | 東京都千代田区九段南2丁目3番1号 |
| 【氏名又は名称】 | 株式会社ジーエスアイクレオス |

【承継人代理人】

申請人

| | |
|----------|--|
| 【識別番号】 | 100078732 |
| 【住所又は居所】 | 東京都港区虎ノ門三丁目25番2号 ブリヂストン虎ノ門ビル6階 大谷特許事務所 |
| 【氏名又は名称】 | 大谷 保 |

次頁無

特2002-161178

出 願 人 履 歴 情 報

識別番号 [000005278]

1. 変更年月日 1990年 8月27日

[変更理由] 新規登録

住 所 東京都中央区京橋1丁目10番1号

氏 名 株式会社ブリヂストン

特2002-161178

出 願 人 履 歴 情 報

識別番号 [000105154]

1. 変更年月日 2001年11月15日
[変更理由] 名称変更
住 所 東京都千代田区九段南2丁目3番1号
氏 名 株式会社ジーエスアイクレオス

2. 変更年月日 2003年 4月10日
[変更理由] 名称変更
住 所 東京都千代田区九段南2丁目3番1号
氏 名 株式会社GSIクレオス